



TITLE:

单相高密度粉体のレオロジー(粉体物理の現状と展望,2006年度後期基礎物理学研究所研究会)

AUTHOR(S):

波多野, 恭弘

CITATION:

波多野, 恭弘. 单相高密度粉体のレオロジー(粉体物理の現状と展望,2006年度後期基礎物理学研究所研究会). 物性研究 2007, 88(2): 204-211

ISSUE DATE:

2007-05-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/110813>

RIGHT:

単相高密度粉体のレオロジー

東京大学 地震研究所 波多野恭弘¹

ここでは離散要素法シミュレーションによって得られた、単相粉体のレオロジーと摩擦係数の振る舞いに関する新しい現象論を提示する。

1 はじめに

粉体のレオロジーは地球科学 [1] や粉体工学など応用上の重要性がきわめて高いのみならず、平均的な物理量の間に熱力学的な現象論が存在するか? というような基礎物理学的観点 [2] からきわめて興味深い対象である。希薄なガスの状況では気体分子運動論によりそのレオロジーについてある程度のことは分かっているが、現実問題でとくに重要となるような高密度領域、とくに粒子どうしが常に接触してじわじわ流れるような状況についてはこれまでのところ基礎的なところはほとんど分かってないと言ってよい。もっとも、様々な工学的状況では素過程である粒子間相互作用ですら魑魅魍魎の世界なのだから²、巨視的現象論の不備も仕方のないことかもしれない。しかしだからこそ、簡単でよいからある定まった相互作用のもとで成り立つ現象論を徹底的に整備しておき、来るべき統計力学的理論が依拠すべきデータとして、またより複雑な粒子間相互作用がある場合のリファレンスステートとして蓄積しておくことは大切であろう。

本稿では上記目的に基づき、離散要素法シミュレーションで設定される相互作用に従う球状粒子系のレオロジーについて、とくにこれまで知られていなかった高密度かつ低せん断率での振舞いを中心に紹介する。まず、比較的良好に知られている低密度領域でのレオロジー（バグノルド則）について簡単にレビューしたあと、それが高密度側でどのようなレオロジーに遷移していくのかという視点から系統的に紹介する。

2 バグノルドのスケーリング

本題である高密度レオロジーに入る前に、まず低密度レオロジーについて以下で簡単に現在の知見を概観する。まず Bagnold が 1954 年に実験的に見出した [3]、せん断応力 σ と垂直応力 P がシアレート³の二乗に比例するという法則から始める。

$$\sigma = A(\theta) \frac{m}{d} \gamma^2 \quad (1)$$

¹E-mail: hatano@eri.u-tokyo.ac.jp

²粒子の形状効果はもちろんのこと、静電気や表面の水分による凝着力や、真接触部位の塑性変形によってもたらされる回復現象など、粉体相互作用の複雑化は枚挙に暇がない。

$$P = B(\theta) \frac{m}{d} \gamma^2 \quad (2)$$

ここで、 m , d はそれぞれ粒子の平均質量と平均直径であり、 θ は斜面の角度、 γ は局所的なシアレートである。ただし、 $A(\theta)$ と $B(\theta)$ の関数形についてこの段階では確かなことは何も言えず、これらはまた別の論理で定まるべきものである。したがってバグノルド則それ自体は完全な構成方程式というよりはむしろ、スケーリング則と位置づけられるべきものである。

2.1 次元解析的側面

直観的には、バグノルドスケーリングは以下のように理解される。粒子直径 d 、質量 m の粒子からなる系（数密度 ρ ）が定常せん断流（局所せん断率 γ ）にあるとしよう。よく知られているように平均自由行程 l は散乱断面積 a を用いて $l = (a\rho)^{-1} - d$ と表される³。いま速度勾配方向に $l+d$ だけの幅の層を考える。各層の平均流速には $(l+d)\gamma$ だけの速度差があるので、異なる層にいる粒子が衝突するときは大雑把に言って一回あたりの衝突で $m(l+d)\gamma$ の運動量を交換すると考えてよいだろう。衝突頻度は粒子のランダム運動から決まるが、原子分子からなる流体とは異なり、粉体では平均流と熱運動の間でスケールの分離があるわけではない⁴。（熱速度が平均流速より大きくても非弾性衝突によりあつという間に減衰してしまう）。したがってランダム運動による衝突の相対速度も平均流速の差 $(l+d)\gamma$ と同じオーダーであると考えて、粒子間の衝突頻度はおおよそ $\gamma(l+d)/l$ 程度と見積もられる⁵。よって速度勾配方向の運動量の流れ（すなわち応力）は、（衝突頻度） \times （衝突あたりの運動量交換）を衝突断面積 a で割って $m(l+d)^2 l^{-1} a^{-1} \gamma^2$ 、すなわち

$$\sigma \simeq \frac{ma^{-2}\rho^{-1}}{1-a\rho d} \gamma^2 \quad (3)$$

となる。これはバグノルドスケーリングである。全く同様の考察により、圧力についても同様のスケーリングが成り立つことが分かる。

以上の議論においてシアレートの2乗が出てくるための本質的仮定は「粒子の衝突頻度が γ に比例する」であることが分かる。粉体粒子のランダム運動は外部からの仕事によってしか生じ得ず、同様に平均流も外部仕事によってしか生じ得ないので、平均流と粒子のランダム運動の間には何かしらの関係が成り立つことが一般的に期待される。次元解析的な観点から言えば、時間の次元を持っている、系に固有の物理量がシアレートだけならば、熱速度と平均流の速度はどちらもシアレートに比例するだろう。非常に荒っぽい議論ではあるが以上がバグノルドスケーリングのキモである。より数理的な議論は文献 [4] を参照されたい⁶。

³低密度では $(a\rho)^{-1} \gg d$ なので第二項は無視される。

⁴したがって粉体では平均流の揺らぎと粒子レベルでのランダム運動に密接な関係があることが予想される。しかしその関係については筆者にはまだよく分かっていない。

⁵原子分子では $\sqrt{T/m}/l$ であり、もちろん γ とは独立である。

⁶文献 [4] では、「熱流」（ランダム運動のエネルギー流）の divergence が無視できるのならば、温度はせん断率だけで決まり、バグノルドスケーリングが得られる … という構造になっている。ただし熱流の div が無視できる具体的な状況は必ずしも明らかでない。たとえば壁から充分離れたところでは熱流が存在しないことが期待されるが、その場合は暗に大きい系を考えていることになる。しかし単純せん断断的状况では一様状態の不安定化が起こる（ゆえに熱流の div が結局無視できなくなる）ことがよく知られており、しかもその不安定性はサイズが大きいほど顕著である [12]。

もう一つ論じておかなくてはならないのは式 (3) における分母 $1 - apd$ である。これは低密度から徐々に密度を上げていった際、ある密度 $(ad)^{-1}$ に近づくにつれてせん断応力がベキ的に発散することを意味している。実際、文献 [5] での二次元剛体円盤シミュレーションではそのような発散が見えており、せん断応力だけではなく圧力や温度などの様々な物理量が発散するようである [5]。それら発散が本当にベキなのかはまだ確定していないが、ベキであるとしたら各種の発散の指数間の関係がどうなるのかは臨界現象との関わりからも興味深い問題である。この問題は Jenkins によって論じられているが [6]、理論的にはほとんど手のついていない問題である。⁷

さて以上の議論における仮定からも分かるように、バグノルドスケールが成り立つためには粉体粒子の相互作用は衝突的でなければならない。接触している時間が大半を占めると、以上の議論はすべて破綻する。しかし、バグノルドが実際にどのような条件で成り立たなくなるかということは、弾性的な粒子を用いて計算してみるより他はない。そしてそのような接触の状況でのレオロジーは、理論どころか未だ現象論すら存在しない⁸。バグノルドが破れる状況をもう少し明示的に見るために、弾性的粒子を用いた離散要素法シミュレーションの結果を次のセクションで紹介する。

3 大域的レオロジー

3.1 モデル

本節で扱うモデルは離散要素法 [10] の一種であるが、簡単のため接線方向の力（摩擦や弾性力）は働かないモデルとしている。つまり中心力のみのモデルである⁹。

粒子 i と j の間に働く力は具体的に次のように書ける。

$$[f(\epsilon_{ij}) + \zeta \mathbf{n}_{ij} \cdot \dot{\mathbf{r}}_{ij}] \mathbf{n}_{ij} \quad (4)$$

従って壁の影響を排するために系を大きくすれば熱流が無視できるというものでもない。また、シミュレーションでは Lees-Edwards 型境界条件などを使用して壁の影響を排除することができるが、その場合も系の初期条件によっては一樣状態が実現できないことが知られており、バグノルドが実現されるパラメータ領域の広さについては議論の余地がある。

⁷そもそも数値実験でも発散点近傍では inelastic collapse を起こしてシアーが不安定になるので、高密度剛体球系での一樣シアー実現は極めて困難である。結局文献 [5] でなされているように SLLOD 方程式を導入するなど何らかの人工的工夫をしなければならない。また、平均自由時間がゼロになるような極限では剛体球極限という近似（接触時間が平均自由時間より充分小さい）に意味がなくなってしまうことにも注意されたい。実験系では高密度にしていけばすぐに接触時間と平均自由時間とが同程度になり、発散の傾向を見せる前にバグノルドスケールが破れてしまうだろう。

⁸というのはやや言いすぎかもしれない。いくつかの断片的な先行研究は存在している。たとえば C. S. Campbell はレオロジーの硬さ依存性を調べている [7]。ここでは体積分率 60% の粉体について、硬さを系統的に変えた際にレオロジーがバグノルドから外れていく様子が報告されている。（硬いとバグノルドだが柔らかくなってくると破れてくる）。ただしどのように破れるのかという観点ではほとんど何も言っていない。2次元系では da Cruz et al. が比較的硬めの円盤を用い、一定圧力条件でのレオロジーについて系統的なシミュレーションを行い、ある式を提唱している [8]。ただし一定圧力条件ゆえ体積分率もせん断率に依存して変わり、せん断率とせん断応力の関係で見ると希薄な場合でもバグノルドスケールの形にはならず、バグノルド則がどのように破れていくかという視点では見ることが出来ない。もちろん2次元という特殊性も考慮しなくてはならない。他方、3次元では Jop et al. [9] が経験的な摩擦法則を提唱しているが、これはほとんどバグノルド領域のものであり、粒子が常に接触するような状況での法則ではない。

⁹接線力を取り入れたシミュレーションでは、とくに高密度においてシアーバンディングを起こしやすく、一樣シアーが実現困難である。しかも高密度でのシアーバンディングは一定体積条件の場合のみ発生し、一定圧力の条件下では高密度でも一樣シアーが実現される。境界条件によるシアーバンディングの違いは極めて興味深い事実を示唆しているが、本稿の守備範囲外である。

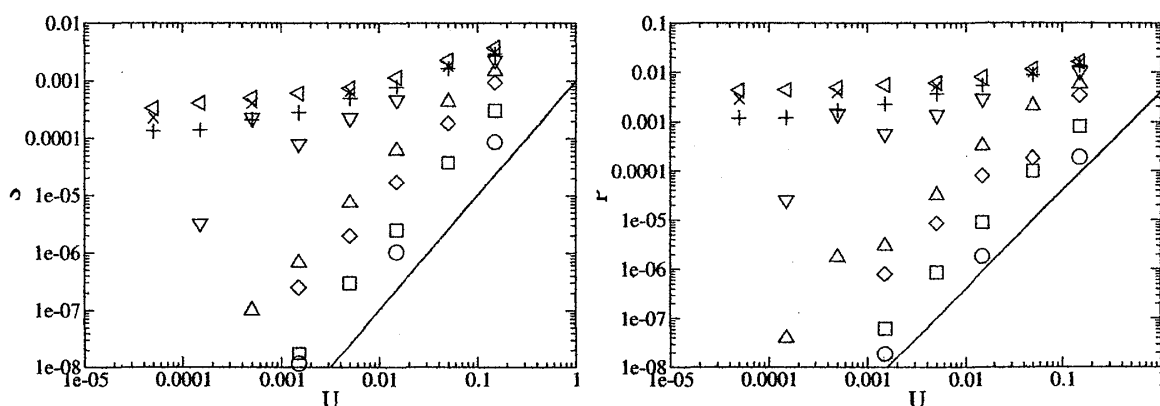


図 1: 一定体積条件せん断流におけるの応力の振る舞い。横軸は壁の（無次元化）速度。左のグラフはせん断応力、右のグラフは法線方向の圧力で、どちらも下から上に行くほど高密度のデータである。 ∇ (63.3%) と $+$ (63.9%) を境にして、せん断率ゼロ極限で非ゼロの応力成分が残ることが見て取れる。直線は $\dot{\gamma}^2$ に比例するバグノルドスケーリングを表す。つまりある密度を境にして、シアレートゼロ極限での応力の振る舞いが定性的に異なる。（低密度ではどちらもバグノルドスケーリングに従うが高密度では一定値。）また、低密度側でもせん断率が大きくなるとバグノルドから外れることに注意。たとえば \triangle (62.1%) のデータなど。

ここで $\mathbf{n}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/|\mathbf{r}_{ij}|$ は単位法線ベクトルであり、 $\epsilon_{ij} = 1 - |\mathbf{r}_{ij}|/(R_i + R_j)$ は接触によるひずみである。 $f(\epsilon)$ は接触ひずみによって生じる弾性力を表す。ここでは主に線形力モデル $f(\epsilon) = k\epsilon$ による結果を用いるが、Hertz 力 $f(\epsilon) = k\epsilon^{3/2}$ などを用いてもレオロジーに関する主な結果は変わらない。

系は z 方向に同種粒子を固めて作った壁ではさまれており、この二つの壁が y 方向に動くことでシアーを実現する。 x, y 方向には周期境界条件を課している。つまり一定体積のもとでの単純せん断を考えている。系はおよそ 1 万個の粒子からなり、粒子直径は d から $0.7d$ まで一様分布している。層厚はおよそ $25d$, x と y 方向のサイズは $15d$ 程度である。

粉体系はシアーバンディング（せん断の局在化）などを起こして均一なシアーがかからないことがよくある。とくに低密度での定積シアーでは密度均一な状態が不安定化することがよく知られている [11, 12]。これは壁付近が疎になってしまい、シアーがほとんどかからなくなってしまう現象である。（逆にバルクではクラスタリングを起こして密度が上がる）。今の系においてもある程度密度が低くなるとそのような現象が発生するが、ここではそのような領域は考えない。以下で論じるのはすべて、均一なシアーがかかっている場合の話である。

3.2 レオロジー

コントロールパラメータはシアレート $\dot{\gamma}$ と体積分率 ν である。レオロジーとはせん断応力の $\dot{\gamma}$ 依存性であるから、体積分率の値に応じてさまざまなレオロジー曲線が得られることになる。その様子を示したものが図 1 である。ここから分かることを端的にまとめると以下の 3 点となる。

1. 密度を上げていくと体積分率 60 % 前後でバグノルドスケーリングは破れる。

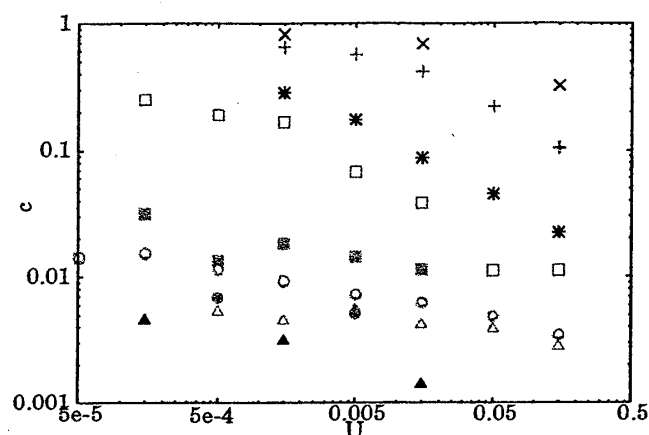


図 2: 壁の無次元速度 U と無次元平均自由時間 c との関係を様々な密度についてとったもの。密度と壁の速度は図 1 と対応している。異なるシンボルはそれぞれの密度に対応しており、上から下に行くほど高密度のものになる。

2. バグノルドの破れ始める領域はせん断率にも依存する（密度が低くてもせん断率が充分高ければバグノルドは破れる）。
3. ある体積分率（約 64 %）より上では、せん断率ゼロ極限でもせん断応力と圧力が残る。

実際、図に示されているせん断率の領域では体積分率 58 % 程度まではほぼ完全にバグノルドだが、61 %、62 % くらいから高せん断率領域で傾きが 2 よりも小さくなりバグノルドからは外れる¹⁰。つまりバグノルドが成り立つ条件は体積分率だけでなくせん断率にも関係する。低密度領域でも高せん断率でバグノルドスケールが破れる原因は、粒子のランダム速度が大きくなることによって自由飛行時間が小さくなり、接触時間の占める割合が相対的に増すことによる¹¹。

3.3 バグノルドスケールと平均自由飛行時間

前節で論じた接触時間の占める割合とレオロジーの関係についてもう少し明示的に見てみる。接触の度合いを表すオーダーパラメータ c を (平均自由飛行時間)/(全時間) で定義する。あるいはスナップショット的な量として、(どの粒子とも接していない粒子数) / (全粒子数) として定義してもよい。(図 3 はこちらで計ったもの)。 $c = 1$ なら剛体球、 $c = 0$ ならば完全に接触的な状況である。驚くのは、図 1 でバグノルドが成り立っているように見える領域が図 2 では $c > 0.2$ 程度の領域に対応しており、むしろかなり接触的な状況も含んでいるということである。つまり、(理論的導出で行った仮定の限界を越えて) かなり高密度の接触的状況でもバグノルドスケールはよ

¹⁰面白いことに、高せん断率においては異なる密度でのデータが同じ直線に漸近していくように見える（実際に、更なる高せん断領域を計算してみるとその傾向はほぼ間違いないようである。具体的な指数などの詳細は文献 [13] を参照）。さらによく見ると途中でプラトーのような状態を経ていることも分かるこれは圧力のデータで特に顕著なのであるが、63.3 % のデータでは S 字型の曲線になっている。このあたりの細かい挙動については更なる調査が必要である。

¹¹接触時間は $\sqrt{m/k}$ のオーダーであり γ には依存しない。

く成り立っている。これは単純な運動論による考察では理解できず¹²、今後更なる研究が必要である。

3.4 ジャミング転移とレオロジー

他方、高密度のせん断率ゼロ極限で応力が残る現象も重要である。その現象が観測され始める密度にはある閾値があり、数値的にはおよそ 64%前後である。これは（静的な）粒子多体系で知られているジャミング転移 [14] における転移点とほぼ同じである。ジャミング転移とは静止している系が（ゼロでない）せん断剛性率を持ち始める点であり、いわば粉体系が流体的に振舞うか固体的に振舞うかを定める閾密度である。ここで観察されたようなレオロジーにおける閾密度も、静止状態における転移現象と密接に関連している。もちろん動的状态からせん断率ゼロリミットで定義される閾密度と、静止状態での閾密度とが厳密に同一のものである保証はない。レオロジーにおける（動的）ジャミング転移と静的ジャミング転移のつながりに関しても、粒子的観点からの精密な研究が必要であろう。

3.5 変数変換とレオロジーマスターカーブ

大局的なレオロジーに戻る。図 1 のレオロジー曲線は、低密度低せん断率におけるバグノルドや高密度低せん断率における降伏応力の出現、さらには高せん断率での妙な振舞いなど、いろいろゴチャゴチャ出てきていて非常に分かりにくいものである。しかし実は、これらレオロジーを統一的に記述するマスターカーブが存在する。そのために、レオロジーを記述する変数の変換を行うことにする。すなわち、速度勾配方向 z の圧力 P_z を用いて、 $I = \gamma/\sqrt{P_z}$ 、 $\Pi = P_z/k$ を導入する。¹³ レオロジーを (γ, ν) でなく (I, Π) で見てみると、きれいな関係式が浮かび上がる。図 2 の右のグラフは σ/γ^2 を $I = \gamma/\sqrt{P}$ でプロットし直したものであるが、図 1 ではバラバラだったデータが一本のマスターカーブ ($I^{-1.8}$ に比例) に乗ることが分かる。もとのデータがかなり幅広い密度領域にわたっており、シアの物理的ピクチャーが（気体的な流れからクリープ的塑性変形まで）密度によって全く異なるにも関わらず、それらが全て一本のマスターカーブに乗るということは驚きである。このマスターカーブがどのような物理過程に対応しているのかという点についても、現時点では確固としたことは分かっていない¹⁴。今後の更なる研究が必要である。

4 摩擦法則について

ここまで一定体積条件下でのせん断応力や圧力などの振る舞いについて見てきたが、それらの比で定義される摩擦係数の振る舞いも非常に重要である。（とくに実験は定圧条件で行われること

¹²たとえば初等運動論に現れる衝突率に有限接触時間の効果も入れてみると分かるように、バグノルドの成り立つ条件は $c \simeq 1$ （接触時間が無視できる）という自明なものしか出てこない。

¹³ I は（筆者の知る限りでは）Ancy によって最初に導入され、Inertial number と呼ばれている [15]。

¹⁴一つの現象論的解釈としては文献 [13] がある。

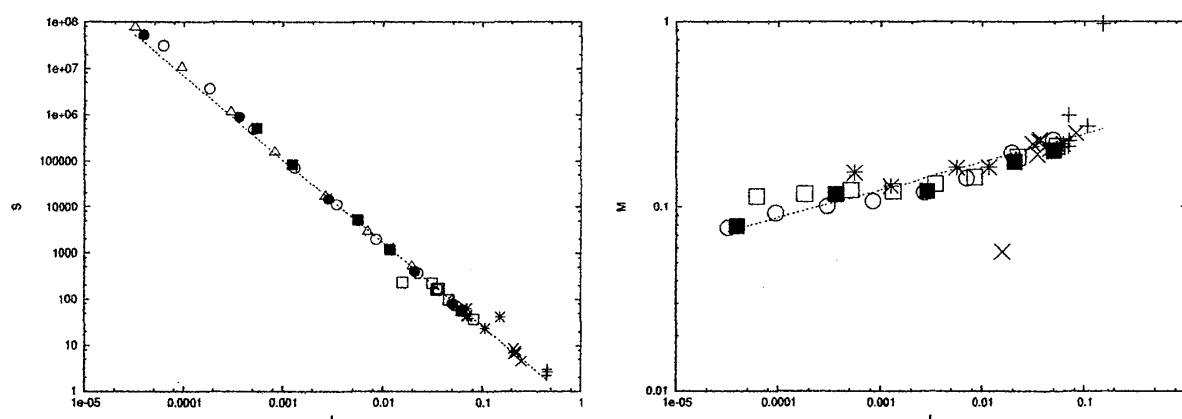


図 3: 左: 図 1 のデータを inertial number $I = \gamma/\sqrt{P}$ と σ/γ^2 の関係としてプロットし直したものの。直線は $I^{-1.8}$ 。右: 同じく図 1 のデータを I と摩擦係数 σ/P の関係としてプロットし直したものの。直線は $I^{0.2}$ 。

が多く、その場合せん断応力の振る舞いは摩擦係数のそれと同じである)。

摩擦係数の振る舞いは、レオロジーマスターカーブ $\sigma/\gamma^2 = sI^{-1.8}$ より直ちに $\sigma/P = sI^{0.2}$ と得られる。これは摩擦係数がすべり速度の 0.2 乗で増加し続ける摩擦法則を意味する。指数が 0.2 乗と小さいため、摩擦係数の変化はすべり速度が桁で変わらなないと観測されないが¹⁵、ここでもバグノルド的な気体領域からぎちぎちに詰まった固体的領域まで、粉体摩擦係数の振る舞いが統一的に記述されることに注意されたい¹⁶。この摩擦法則の意味するところについてはまだよく分かっていない。摩擦の実験は数多くあるが、とくにゆっくりした摩擦では真接触面における化学的効果が強く効き¹⁷、別の摩擦法則が成立することが知られている [1]。しかしすべり速度が高速になるとこの法則は破れ、別のべき的な増大によって代わることがいくつかの実験で知られている [17, 18, 19]。ただしこれらの実験でも指数はさまざまなものが得られており、高速すべりに対する普遍的な法則は未だ知られていない。よりコントロールされた精密な実験が待たれるところである。¹⁸

参考文献

- [1] C. Marone, Ann. Rev. Earth Planet. Sci. **26**, 643 (1998).
- [2] S. F. Edwards and D. V. Grinev, Adv. Phys., **51**, 1669 (2002).

¹⁵ 古典的なクーロン・アモントン則では動摩擦係数はすべり速度に依存しなかったことを思い出されたい。

¹⁶ 摩擦法則 $\sigma/P = sI^{0.2}$ は、実は図 2 で見るように I が小さいところではあまり合わない。数値実験の範囲でも、 $I \rightarrow 0$ では摩擦係数が非ゼロの一定値に収束するように見える。摩擦係数のデータに関するより正確なフィットは切片を含めて $\sigma/P = \mu_0 + \tilde{s}I^{0.26}$ と書かれる [16]。

¹⁷ 摩擦に本質的である界面化学的プロセスは主に二つ。まず第一に真接触面積でのすべりが熱的活性化過程であること、第二には真接触部位の塑性変形によりその面積 (したがって摩擦係数) が時間に依存して増大することである。[20]。

¹⁸ 現時点では筆者の単なる願望である。そのような実験はまだ計画されていない。ご興味を持たれた方は 1 ページ目に記載のメールアドレスまでご連絡下さい。

- [3] R. A. Bagnold, Proceedings of the Royal Society of London A **225**, 49 (1954).
- [4] N. Mitarai and H. Nakanishi, Phys. Rev. Lett. **94**, 128001 (2005).
- [5] G. Lois, A. Lemaitre, and J. M. Carlson, Phys. Rev. E **72**, 051303 (2005).
- [6] J. T. Jenkins, Phys. Fluids, **18**, 103307 (2006).
- [7] C. S. Campbell, J. Fluid Mech. **465**, 261 (2002).
- [8] F. da Cruz, S. Emam, M. Prochnow, J.-N. Roux, and F. Chevoir, Phys. Rev. E **72**, 021309 (2005).
- [9] P. Jop, Y. Forterre, and O. Pouliquen, Nature **441**, 727 (2006).
- [10] P. A. Cundall and O. D. L. Strack, Geotechnique **29**, 47 (1979). 日本語による詳しい解説には、伯野元彦「破壊のシミュレーション」がある。
- [11] P. R. Nott, M. Alam, K. Agrawal, R. Jackson, and S. Sundaresan, J. Fluid Mech. **397**, 203 (1999).
- [12] K. Saitoh and H. Hayakawa, Phys. Rev. E **75**, 021302 (2007)
- [13] T. Hatano, M. Otsuki, S. Sasa, J. Phys. Soc. Jpn. **76** 023001 (2007).
- [14] C. O'Hern, L. E. Silbert, A. J. Liu, and S. R. Nagel, Phys. Rev. E **68**, 011306 (2003).
- [15] C. Ancey, P. Coussot, and P. Evesque, J. Rheol. **43**, 1673 (1999).
- [16] T. Hatano, cond-mat/0612360 (2006).
- [17] M. L. Blanpied, T. E. Tullis, and J. D. Weeks, Geophys. Res. Lett. **14**, 554 (1987).
- [18] F. Heslot, T. Baumberger, B. Perrin, B. Caroli, and C. Caroli, Phys. Rev. E **49**, 4973 (1994).
- [19] T. Baumberger, F. Heslot, and B. Perrin, Nature **367**, 544 (1994).
- [20] M. Nakatani, J. Geophys. Res. **106**, 13347 (2001); M. Nakatani, J. Geophys. Res. **103**, 27239 (1998); 同著者によるユニークな講演録が以下の URL にある。 <http://www.eri.u-tokyo.ac.jp/KOHO/NEWSLETTER/200510/nl200510.pdf>